

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**

A1

**DEMANDE  
DE BREVET D'INVENTION**

(21)

**N° 74 43004**

(54)

**Procédé de fabrication d'objets en résine synthétique.**

(51)

Classification internationale (Int. Cl.<sup>3</sup>). **B 29 D 23/02, 27/04.**

(22)

Date de dépôt ..... **27 décembre 1974, à 15 h.14 mn.**

(33) (32) (31)

Priorité revendiquée : *Demandes de brevets déposées au Japon le 28 décembre 1973, n. 1.245/1974, le 27 juin 1974, n. 73.628/1974 et le 29 juin 1974, n. 74.642/1974 au nom de la demanderesse.*

(41)

Date de la mise à la disposition du public de la demande ..... **B.O.P.I. — «Listes» n. 30 du 25-7-1975.**

(71)

Déposant : Société dite : **ASAHI-DOW LIMITED**, résidant au Japon.

(72)

Invention de :

(73)

Titulaire : *Idem* (71)

(74)

Mandataire : **Cabinet de Carsalade du Pont (A. Lourié et W. Flechner).**

**COPY**

La présente invention est relative à un procédé nouveau de fabrication d'objets en résine synthétique.

Suivant les procédés de moulage classiques, on fabrique des objets creux par un moulage par soufflage ou par un procédé  
5 par liaison suivant lequel on assemble deux ou plusieurs pièces moulées l'une à l'autre. Ces deux procédés sont coûteux et imposent certaines limites aux formes des produits obtenus. En outre, on connaît un procédé de moulage par injection qui produit des pièces moulées mousse. Le moulage par injection est efficace  
10 pour former des objets ayant des formes compliquées mais il ne permet pas d'obtenir des pièces moulées à peau lisse si on utilise une résine synthétique mousse. En outre, les pièces moulées sont en général enlevées d'un moule après que la résine injectée a été refroidie. Mais la durée de refroidissement est d'autant  
15 plus longue que la section de la pièce moulée est plus épaisse.

L'invention vise un procédé nouveau de fabrication d'objets qui surmonte tous les inconvénients du procédé classique mentionné ci-dessus.

Le procédé suivant l'invention consiste à injecter une  
20 résine fondue dans une cavité de moule et à charger une masse de fluide sous pression dans cette cavité, de sorte qu'elle soit enfermée par la résine.

Au dessin annexé, donné uniquement à titre d'exemple :

La figure 1 est un schéma vu en coupe d'un moule pour  
25 la mise en oeuvre du procédé suivant l'invention.

Les figures 2 et 3 sont des vues en coupe montrant des pièces moulées creuses fabriquées par le procédé suivant l'invention.

La figure 4 est une vue en coupe d'une autre variante  
30 de moule qui peut être utilisé dans le procédé suivant l'invention.

La figure 5 est une vue en coupe représentant une pièce moulée fabriquée en utilisant le moule représenté à la figure 4.

Les figures 6A à 6C sont des schémas illustrant un processus de fabrication d'un article mousse par le procédé suivant  
35 l'invention.

Les figures 7A à 7C sont des schémas illustrant un autre processus de préparation d'un article mousse par le procédé suivant l'invention.

40 Les figures 8A à 8D sont des schémas illustrant encore

COPY

un autre processus de fabrication d'un article mousse suivant le procédé de l'invention.

La figure 9 est une vue en coupe illustrant une autre variante de moule utilisé dans le procédé suivant l'invention ; et

5 Les figures 10A à 10D sont des schémas illustrant un processus de fabrication d'un objet à section épaisse par le procédé suivant l'invention.

En se reportant à la figure 1, on voit un cylindre 1 d'injection d'une machine (non représentée) de moulage par injection d'un type bien connu dans la technique. Dans le cylindre 1  
10 est disposée une vis 2 pour plastifier et injecter une résine synthétique à mouler. La vis 2 peut être entraînée en rotation ou entraînée autrement par un moyen non représenté.

La buse 3 du cylindre 1 est reliée à l'entrée d'un moule 4 d'une manière convenable bien connue dans la technique. L'intérieur du cylindre 1 communique avec la cavité 5 du moule par un  
15 passage 6 de la buse 3 et par une carotte 7 du moule 4. La cavité 5 est formée par une partie 8 fixe du moule et par une partie 9 mobile du moule.

Pour effectuer le procédé suivant l'invention, on place un dispositif 10 pour l'injection d'un fluide à la sortie du cylindre 1 d'injection. Le dispositif 10 d'injection du fluide a une sortie 11 qui débouche dans le passage 6 de la buse 3, de manière à permettre l'amenée d'un fluide dans la cavité 5 par la  
25 carotte 7 du moule 4. La sortie 11 est reliée à une chambre 12 sous pression d'un cylindre 13 pour un fluide par un conduit 14 et une vanne 18 de réglage. Un piston 15 est monté coulissant dans le cylindre 13. Ce piston peut mettre sous pression un fluide fourni à la chambre 12 en provenance d'une source quelconque par  
30 un conduit 16 ayant une vanne 17. Quand le piston 15 se meut vers la gauche, tel que représenté à la figure 1, le fluide de la chambre 12 est mis sous pression par le piston 15 et pénètre dans la cavité 5 par le conduit 14, le dispositif 10 d'injection du fluide et la carotte 7.

35 La résine synthétique à mouler est plastifiée à l'aide de la vis 2 dans le cylindre 1 d'injection et est injectée dans la cavité 5 par la buse 3 et la carotte 7 en une quantité qui est inférieure au volume de la cavité 5, cette injection s'effectuant sous l'action de la pression exercée par la vis 2. Ensuite,  
40 un fluide sous pression est envoyé par la sortie 11 du dispositif

10 d'injection de fluide dans la cavité 5, de manière à former une partie 20 creuse dans la résine 21 injectée dans la cavité 5 comme illustré à la figure 2. Si on injecte encore de la résine dans la cavité 5, on peut obtenir des pièces moulées 21A dont la  
5 partie 20A creuse est fermée, comme représenté à la figure 3.

On peut charger le fluide dans la cavité 5 en même temps que la résine y est injectée. Dans ce cas, on peut empêcher la cassure de la couche de résine dans la cavité du moule due aux formes des pièces moulées à fabriquer. Ceci semble dû au fait que  
10 le fluide est chargé dans la cavité en étant entouré par la résine, de sorte que la partie creuse peut être facilement formée dans les pièces moulées au sein de la cavité.

Quand le fluide casse la couche de résine de la cavité même quand on opère à la manière indiquée ci-dessus, si bien  
15 qu'on ne peut obtenir des résultats reproductibles et satisfaisants, il vaut mieux mettre la cavité du moule à l'avance sous pression à l'aide d'un gaz sous pression avant l'injection de la résine à mouler.

La figure 4 représente un autre moule qui peut être uti-  
20 lisé pour obtenir des pièces moulées satisfaisantes sans pressurisation à l'avance de la cavité du moule. Ce moule comprend une partie 30 fixe et des première et seconde parties 31 et 32 mobiles. La partie fixe 30 et la première partie mobile 31 forment un canal principal 33 entre elles avec une carotte 34 et un canal se-  
25 condair 35 à leurs extrémités. Le canal 35 communique avec une cavité 36 du moule constituée par les première et seconde parties 31 et 32. Cette cavité comporte un passage 37 qui communique avec l'atmosphère par une vanne 38.

La figure 5 représente un article 39 moulé à l'aide du  
30 moule illustré à la figure 4. Quand on charge un fluide sous pression dans la cavité 36, il traverse la résine injectée et s'évacue de la cavité vers l'atmosphère par le passage 37. Il s'ensuit que l'on peut obtenir une reproductibilité satisfaisante de la forme et que l'on peut obtenir des passages 40 de forme compli-  
35 quée dans les pièces moulées. En outre, on peut effectuer le refroidissement des pièces moulées dans les passages 40 en continuant à alimenter en fluide la cavité.

Quand on veut fabriquer des pièces moulées de plus grande épaisseur, on agrandit le volume de la cavité du moule en  
40 faisant se mouvoir la partie mobile, par exemple la partie 9 de

la figure 1, en même temps que l'on charge le fluide dans la cavité. En outre, quand la cavité a une épaisseur plus petite lors de l'injection de la résine, l'agrandissement de la cavité est possible en vue d'obtenir des pièces moulées ayant des couches  
5 extrêmement fines et extrêmement uniformes.

Par l'expression "résine synthétique", on entend toutes matières résineuses thermoplastiques généralement utilisées dans la technique. Néanmoins, on peut utiliser toutes matières résineuses thermodurcissables convenables. En outre, on peut ajouter  
10 divers additifs à ces matières résineuses.

Par l'expression "fluide", on entend une masse liquide ou gazeuse. La masse gazeuse peut être de l'air, de préférence de l'azote gazeux, du gaz carbonique, etc. La masse liquide peut être de l'eau, mais tout liquide convenable qui ne nuit pas à la  
15 résine à mouler peut être utilisé. On chauffe à l'avance de préférence le liquide au voisinage de la température de la résine plastifiée quand on le charge dans la cavité.

Suivant l'invention, on peut utiliser une résine moussable pour obtenir des pièces moulées mousse ayant des peaux plus  
20 lisses que celles des pièces moulées fabriquées suivant l'art antérieur. En se reportant à nouveau à la figure 1, on charge une masse de gaz dans la cavité 5 par la buse 3 et la carotte 7 après ou pendant l'injection de la résine moussable pour former dans celle-ci une partie creuse. Puis on fait sortir le gaz de la cavité 5 d'une manière bien connue dans la technique quand la couche  
25 extérieure superficielle de la résine injectée durcit. En conséquence, la résine moussable se dilate vers l'intérieur pour former des pièces moulées ayant une couche extérieure non mousse et une couche intérieure mousse entourée par la couche extérieure.  
30 Cette couche extérieure non mousse a une peau plus lisse puisque sa masse volumique est supérieure à celle des pièces moulées fabriquées suivant l'art antérieur. La marque d'un remous à la surface des pièces moulées peut être évitée en mettant la cavité sous pression à l'aide d'un gaz avant le stade d'injection de la  
35 résine qui peut mousser.

On peut injecter la résine dans la cavité 5 de manière que cette résine 50 soit entourée d'une résine 51 non moussable, comme illustré à la figure 6A. Quand une masse de gaz est chargée dans la cavité 5, ces résines, comme illustré à la figure 6B,  
40 sont repoussées contre les parois du moule, de manière à former

une partie 52 creuse. Quand le gaz est évacué de la cavité après que la couche de résine non moussable a durci au moins en sa partie superficielle extérieure, la couche 50 de résine moussable, comme représenté à la figure 6C, s'étend jusqu'à devenir un corps 50A cellulaire emplissant la partie 52 creuse.

Les figures 7A à 7C illustrent un autre processus de fabrication de pièces mousse suivant l'invention. On fait s'expanser une résine moussable une fois qu'elle a été injectée dans la cavité puis on charge une masse de gaz dans la cavité (voir les figures 7A et 7B). Quand le gaz est évacué de la cavité, une couche intérieure de résine prend à nouveau de l'expansion pour former un objet ayant une couche 53 superficielle de densité plus élevée et un corps 54 cellulaire entouré par la couche 53 superficielle.

Dans un autre processus encore de fabrication de pièces moulées mousse, illustré aux figures 8A à 8D, une cavité 55 est susceptible d'être agrandie sous l'action de la pression d'injection d'une résine moussable. Quand la résine 56 fondue est injectée dans la cavité 55, cette dernière est agrandie comme représenté à la figure 8B. En chargeant ensuite du gaz, la cavité 55 s'agrandit à sa dimension normale tandis que la résine est repoussée contre les parois de la cavité, de manière à former une partie 57 creuse à l'intérieur (voir figure 8C). On évacue ensuite le gaz de la cavité, si bien que la couche intérieure de résine prend de l'expansion et devient un corps cellulaire intérieur entouré d'une couche superficielle ayant une densité plus élevée, comme illustré à la figure 8D.

La figure 9 illustre un autre moule pour la mise en oeuvre du procédé suivant l'invention. Le moule lui-même 60 comprend une première partie 61 ayant une carotte 62, une seconde partie 63 ayant un canal 64 secondaire et une troisième partie 65 mobile par rapport à la seconde partie 63. Les première et seconde parties 61 et 63 forment entre elles un canal principal 66, qui communique à ses extrémités opposées avec la carotte 62 et le canal secondaire 64 respectivement. Les deuxième et troisième parties 63 et 65 constituent entre elles une cavité 67 de moule, qui communique à l'une de ses extrémités avec le canal secondaire 64, tandis qu'à son autre extrémité elle comprend un passage 68 pour l'évacuation du gaz.

La première partie 61 est munie d'un passage 69 d'ali-

mentation qui est relié au canal principal 66. La sortie de ce passage d'alimentation peut être ouverte ou fermée sélectivement à l'aide d'une vanne 70 à piston 71 monté coulissant dans un cylindre 72. Le piston 71 est destiné à recevoir sur ses deux côtés une pression amenée par l'une ou l'autre des ouvertures 73 et 74.

Le passage 69 est également relié à une vanne 75 à trois voies par l'intermédiaire d'un conduit 76. La vanne 75 permet d'établir une communication entre le passage 69 et une entrée 77 qui peut être reliée à toute source de pression convenable (non représentée) ou avec une autre entrée 78 qui peut être reliée à toute source de refroidissement (non représentée).

La résine fondue 80 qui peut être plastifiée dans toute machine de moulage par injection, non représentée, est injectée dans la cavité 67 du moule par la carotte 62, le canal 66 principal et le canal 64 secondaire en une quantité inférieure au volume de la cavité (voir figure 10A). La vanne 70 est alors ouverte et on envoie du gaz ou un liquide sous pression dans la cavité 67 par le canal 66 principal et le canal 64 secondaire, la vanne à trois voies 75 étant alors dans la position illustrée à la figure 9. Le gaz chargé traverse la résine injectée 80 et est évacué à l'atmosphère par le passage 68 en formant une partie 81 creuse dans la résine, comme illustré à la figure 10B. Ensuite, on fait tourner la vanne 75 à trois voies de manière à établir une communication entre le passage 69 et l'entrée 78, de sorte qu'un agent réfrigérant, tel que de l'eau, est envoyé dans la partie 81 creuse, de manière à refroidir la résine 80. Au bout d'un temps donné, on fait fonctionner à nouveau la vanne 75 à trois voies pour établir une communication entre le passage 69 et l'entrée 77. Du gaz est envoyé dans la partie 81 creuse de résine qui se trouve dans la cavité 67 de manière à repousser l'agent réfrigérant et à l'évacuer de la partie 81 creuse, comme illustré à la figure 10D.

Le processus illustré aux figures 10A à 10D est efficace pour abréger la durée de refroidissement d'une pièce moulée, parce que cette dernière est également refroidie par ses parois intérieures.

Les exemples suivants illustrent l'invention.

#### Exemple 1

On moule une résine thermoplastique en un article affectant la forme d'un disque d'un diamètre de 150 mm et d'une épaisseur de 7 mm en utilisant le moule illustré à la figure 1. La ré-



sine thermoplastique utilisée est du polystyrène qui est plastifié à 200° C et injecté dans la cavité du moule en une quantité de 80 g. On envoie ensuite de l'azote gazeux dans la cavité du moule sous une pression de 150 kg/cm<sup>2</sup>. Quand la résine a été refroidie et durcie dans la cavité, on obtient des pièces moulées ayant une partie creuse, comme illustré à la figure 2. Quand de la résine plastifiée est en outre injectée dans la cavité du moule en une quantité d'environ 20 g après que l'azote gazeux y a été chargé, on obtient, après refroidissement en vue du durcissement, des pièces moulées creuses telles qu'illustrées à la figure 3.

#### Exemple 2

Dans le moule illustré à la figure 1, on injecte du polystyrène fondu, la cavité du moule affectant la forme d'un disque d'un diamètre de 20 cm et d'une épaisseur de 1 cm. L'injection se fait par un canal central direct. On charge ensuite de l'azote gazeux sous une pression de 50 kg/cm<sup>2</sup> par le même canal. Cependant que l'on charge le gaz sous pression dans la cavité, on fait s'éloigner une partie mobile du moule de l'une de ses parties fixes, de sorte que la cavité du moule est agrandie et a une épaisseur de 3 cm. De la sorte, on obtient des pièces moulées ayant une partie creuse plus grande et une densité moyenne de 0,4.

#### Exemple 3

On reprend l'exemple 2 si ce n'est que l'on règle la cavité du moule à une épaisseur de 3 cm. On obtient des pièces moulées ayant des couches superficielles un peu plus épaisses que celles des pièces moulées obtenues à l'exemple 2.

#### Exemple 4

On moule des articles mousse en utilisant le moule illustré à la figure 1. A de la résine de polystyrène on ajoute, à titre d'agent moussant, 6% en poids de n-pentane et 0,2% en poids d'amide de l'acide azodicarboxylique et l'on plastifie à 200° C. Ensuite, on injecte cette résine de polystyrène fondue dans la cavité d'un moule affectant la forme d'un disque d'un diamètre de 150 mm et d'une épaisseur de 10 mm en passant par un canal central direct. La cavité du moule est constituée à l'aide de parties de moule en fer et elle est mise au préalable sous une pression de 10 kg/cm<sup>2</sup> par de l'air avant que l'on injecte de la résine en une quantité de 100 g. Ensuite, on envoie de l'azote gazeux sous une pression de 80 kg/cm<sup>2</sup> dans la cavité pour former

une pièce moulée creuse. Cinq secondes après, on retire l'azote gazeux de la cavité, de sorte que la résine moussable puisse s'y  
expanser. L'article mousse obtenu a une couche superficielle lisse et un corps intérieur mousse entouré par la couche superficielle ; sa densité moyenne est de 0,57. Quand on établit une communication entre la cavité du moule mise au préalable sous pression et une source de dépression lors de l'évacuation de l'azote gazeux, on obtient des articles ayant des surfaces plus lisses. En outre, la résine s'expande de manière plus uniforme en utilisant  
10 de l'hydrogène gazeux chauffé à 250° C.

#### Exemple 5

On moule des articles mousse suivant le processus illustré à la figure 6. Dans le moule illustré à la figure 1, on injecte une résine de polystyrène plastifiée à 200° C dans la cavité  
15 en une quantité de 60 g puis on injecte du polystyrène moussable semblable à celui utilisé à l'exemple 4 en une quantité de 60 g. Ensuite, on envoie de l'azote gazeux dans la cavité du moule sous une pression de 80 kg/cm<sup>2</sup> pour former une partie creuse dans la résine qui a été injectée. Cinq secondes après, on enlève  
20 l'azote gazeux de la cavité, de sorte que la résine moussable peut s'expanser pour former des pièces moulées mousse. Ces pièces moulées consistent en noyaux mousse entourés de couches superficielles lisses. La densité moyenne est de 0,7.

#### Exemple 6

25 Dans le moule représenté à la figure 1, on moule des pièces moulées en forme de disque d'un diamètre de 150 mm et d'une épaisseur de 7 mm. La résine thermoplastique utilisée est du polystyrène et le liquide est de l'eau chauffée à 200° C. On règle d'abord l'épaisseur de la cavité du moule à 5 mm puis on emplit  
30 de résine fondue. Ensuite, on envoie de l'eau chauffée dans la cavité sous une pression de 150 kg/cm<sup>2</sup>. Sous l'action de la pression de l'eau envoyée, l'épaisseur de la cavité augmente à 7 mm. On refroidit dans la cavité les pièces moulées obtenues comportant des parties creuses.

35

#### Exemple 7

Dans le moule illustré à la figure 9, on fabrique des objets cylindriques d'un diamètre de 20 mm et d'une longueur de 300 mm. La résine thermoplastique est de l'ABS et le liquide est de l'eau chauffée à 200° C. On injecte la résine plastifiée dans  
40 la cavité du moule en une quantité représentant 70% du volume de

celui-ci puis on envoie l'eau chauffée dans la cavité 67 du moule sous une pression de 150 kg/cm<sup>2</sup> par l'intermédiaire du passage 69 et de la vanne 75. Finalement, on refroidit les pièces moulées creuses obtenues au sein même de la cavité.

5

Exemple 8

Dans le moule illustré à la figure 9, on fabrique des objets cylindriques de 40 mm de diamètre et de 300 mm de longueur. La résine thermoplastique utilisée est du polystyrène. Elle est plastifiée à 200° C puis injectée dans la cavité du moule en une  
10 quantité représentant les deux tiers du volume de celui-ci. Ensuite, on envoie de l'azote gazeux dans la cavité du moule sous une pression de 100 kg/cm<sup>2</sup> pour former dans la résine une partie creuse, puis on envoie de l'eau froide dans la partie creuse afin de la refroidir. Ensuite, on envoie à nouveau de l'azote gazeux  
15 sous pression dans la cavité pour en expulser l'eau. Suivant l'invention, le temps nécessaire pour mouler un seul objet est de une minute et vingt secondes à une température du moule de 30° C. En revanche, suivant l'art antérieur, il fallait deux minutes et trente secondes.

REVENDICATIONS

1. Procédé de fabrication d'objets en résine synthétique, caractérisé en ce qu'il consiste à injecter de la résine fondue dans une cavité de moule en une quantité inférieure au volume de la cavité et à envoyer une masse de fluide sous pression  
5 dans cette cavité, de manière que cette masse de fluide soit enfermée par la résine.
2. Procédé suivant la revendication 1, caractérisé en ce qu'il consiste à injecter en outre une certaine quantité de résine fondue dans le moule après y avoir envoyé du fluide sous  
10 pression.
3. Procédé suivant la revendication 1 ou 2, dans lequel le fluide est une masse de gaz et la résine est une résine synthétique moussable, caractérisé en ce qu'il consiste à faire sortir le gaz de la cavité du moule quand la résine moussable qui y est in-  
15 jectée, est durcie sur sa couche superficielle extérieure.
4. Procédé suivant l'une des revendications 1 à 3, dans lequel le fluide est une masse de gaz et la résine est une couche intérieure de résine moussable entourée d'une couche extérieure de résine non moussable, caractérisé en ce qu'il consiste à expul-  
20 ser le gaz de la cavité du moule quand la couche extérieure durcit sur sa partie superficielle.
5. Procédé suivant l'une des revendications 1 à 4, caractérisé en ce qu'il consiste à injecter une masse d'agent réfrigérant dans la partie creuse de la résine créée par l'envoi du fluide alors que le fluide est expulsé de la cavité du moule.  
25
6. Procédé suivant l'une des revendications 1 à 5, caractérisé en ce qu'il consiste à mettre la cavité du moule sous pression à l'aide d'un gaz avant l'injection de la résine fondue.
7. Procédé suivant l'une des revendications 1 à 5, caractérisé en ce qu'il consiste à agrandir le volume de la cavité lorsqu'on envoie le fluide dans celle-ci.  
30
8. Procédé suivant la revendication 3 ou 4, caractérisé en ce qu'il consiste à agrandir le volume de la cavité après expulsion du gaz.
9. Procédé suivant l'une des revendications 1 à 5, caractérisé en ce qu'il consiste à chauffer à l'avance le fluide avant de l'envoyer dans le moule.  
35

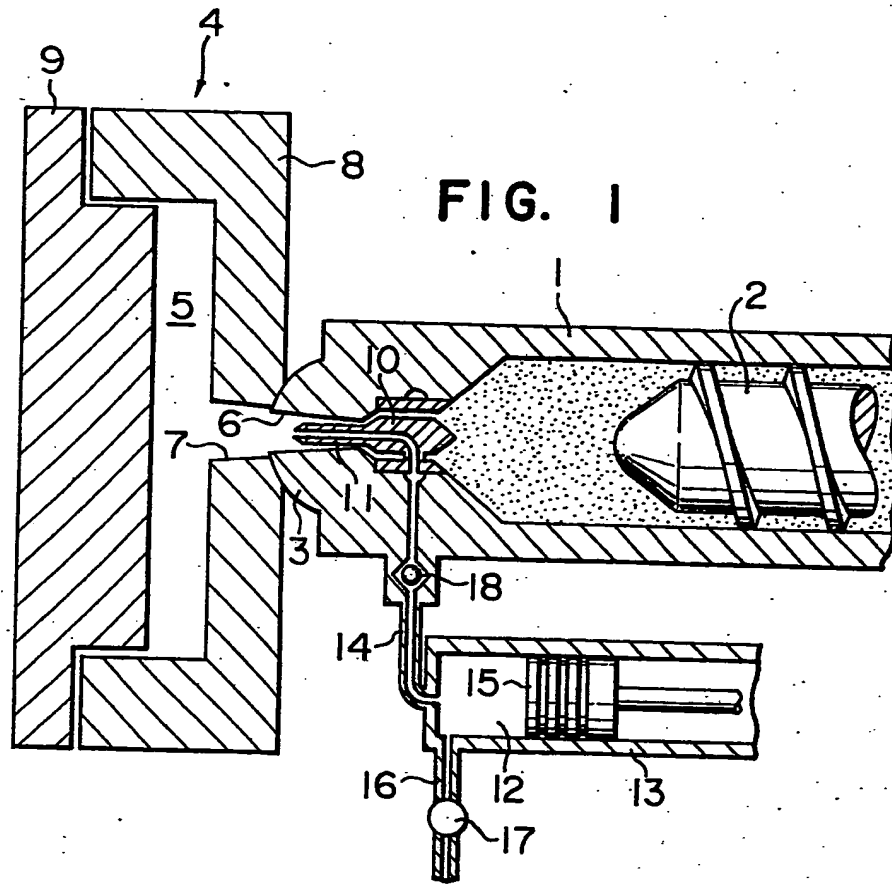


FIG. 1

FIG. 2

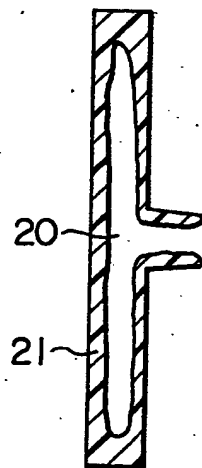


FIG. 3

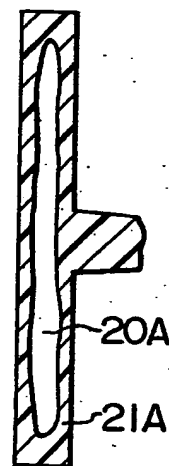


FIG. 4

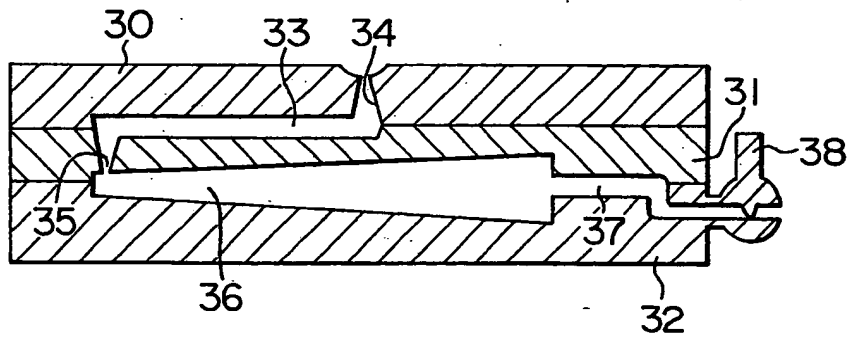


FIG. 5

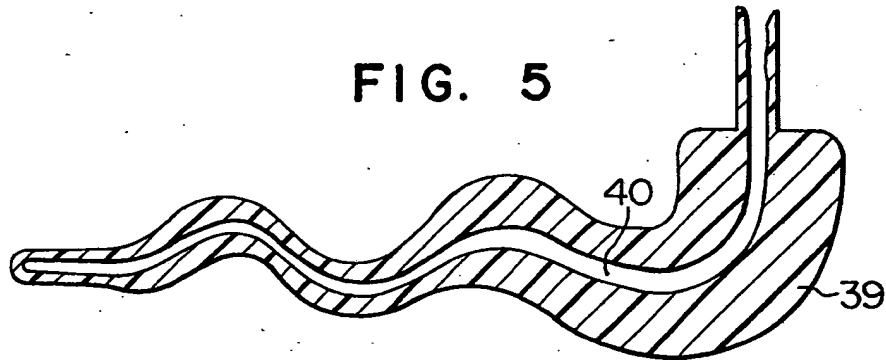


FIG. 6A

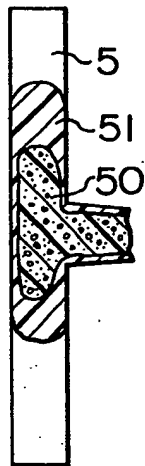


FIG. 6B

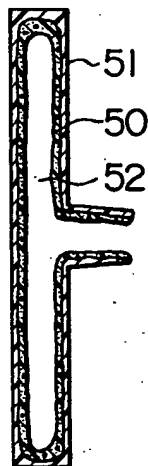


FIG. 6C

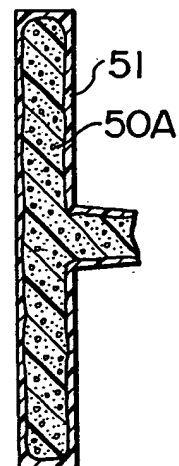


FIG. 7A

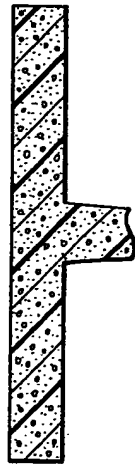


FIG. 7B

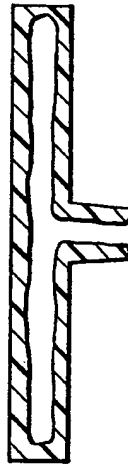


FIG. 7C

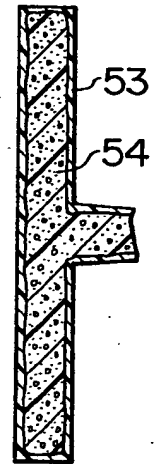


FIG. 8A

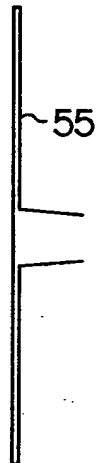


FIG. 8B

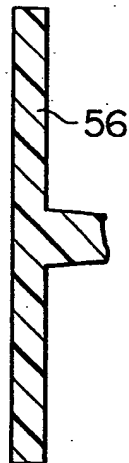


FIG. 8C

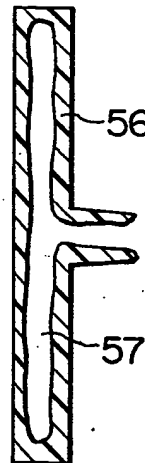
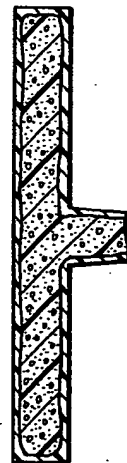
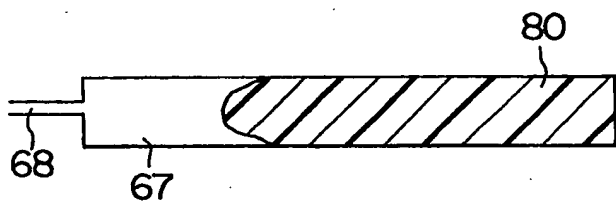
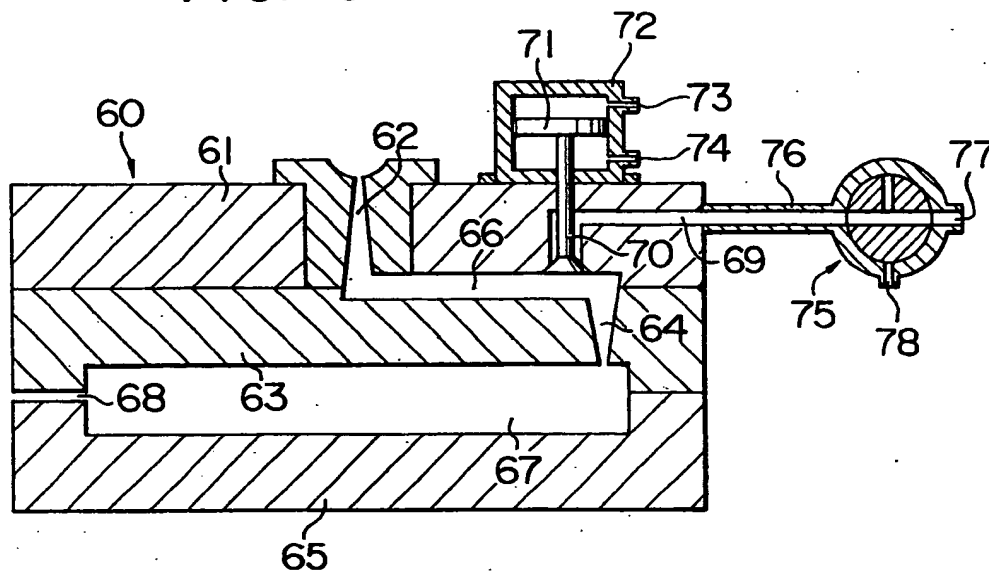


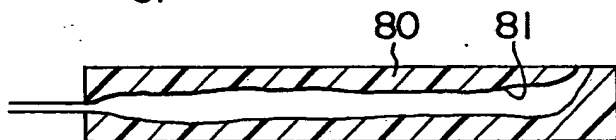
FIG. 8D



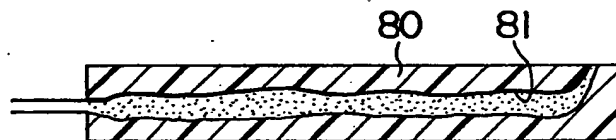
**FIG. 9**



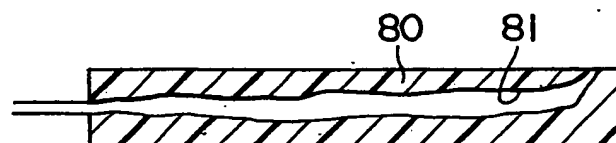
**FIG. 10A**



**FIG. 10B**



**FIG. 10C**



**FIG. 10D**